

FTA0407 7/11

ROYAUME DE BELGIQUE

BREVET D'IMPORTATION



MINISTRE DES AFFAIRES ECONOMIQUES

N° 884.129

Classif. Internat.: B01D

Mis en lecture le: 05-01-1981

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la loi du 24 mai 1854 sur les brevets d'invention;

Vu le procès-verbal dressé le 2 juillet 1978 à 15 h 30

au Service de la Propriété industrielle;

ARRÊTE :

Article 1. — Il est délivré à la Sté dite : **EXXON RESEARCH AND ENGINEERING COMPANY,**
Florham Park, New Jersey, (Etats-Unis d'Amérique),

repr. par les Bureaux Vander Haeghen à Bruxelles,

un brevet d'importation pour: Procédé d'enlèvement sélectif de l'urée
cyclique d'une solution de traitement de gaz,

qu'elle déclare avoir fait l'objet d'un brevet déposé
aux Etats-Unis d'Amérique le 22 décembre 1978 et accordé
le 25 décembre 1979 sous le n° 4.180.548

Article 2. — Ce brevet lui est délivré sans examen préalable, à ses risques et
périls, sans garantie soit de la réalité, de la nouveauté ou du mérite de l'invention, soit
de l'exactitude de la description, et sans préjudice du droit des tiers.

Au présent arrêté demeurera joint un des doubles de la spécification de l'invention
(mémoire descriptif et éventuellement dessins) signés par l'intéressé et déposés à l'appui
de sa demande de brevet.

Bruxelles, le 5 janvier 1981

PAR DÉLÉGATION SPÉCIALE:

L. SALPETEUR
Directeur

T.37-D

P

884 129

U.S. 4,180,548
B. 73 882 DS

DESCRIPTION

Jointe à une demande de

BREVET BELGE

déposée par la société dite:

EXXON RESEARCH AND ENGINEERING COMPANY

ayant pour objet: Procédé d'enlèvement sélectif de l'urée
cyclique d'une solution de traitement
de gaz

Qualification proposée: BREVET D'IMPORTATION
basé sur le brevet américain déposé le 22 décembre 1978
sous le n° 972.500 et accordé le 25 décembre 1979 sous
le n° 4.180.548

La présente invention concerne un procédé de séparation d'un produit de réaction du type urée cyclique dans un procédé de traitement d'un gaz par une amine, qui met en oeuvre un système de régénération et d'absorption. Plus particulièrement, l'invention concerne la précipitation sélective et la filtration d'un produit de dégradation du type urée cyclique qui se forme à titre de sous-produit au cours d'un procédé de lavage d'un gaz.

Il est bien connu des spécialistes de la technique de traiter des gaz et des liquides comme des mélanges contenant des gaz acides tels que CO_2 , H_2S , SO_2 , SO_3 , CS_2 , HCN , COS et des dérivés oxygénés et sulfurés d'hydrocarbures en C_1 - C_4 , par des solutions d'amines afin d'enlever ces gaz acides. L'amine entre habituellement en contact avec les liquides et les gaz acides sous forme d'une solution aqueuse contenant l'amine, dans une tour d'absorption où la solution aqueuse d'amine entre en contact à contre-courant avec le fluide acide.

Les procédés de lavage de fluides acides connus des spécialistes de la technique peuvent généralement se classer en trois catégories.

On se réfère généralement à la première catégorie sous le nom de procédé à l'amine aqueuse conformément auquel des quantités relativement importantes de solution

d'amine sont utilisées au cours de l'absorption. Ce type de procédé est fréquemment mis en oeuvre pour la fabrication de H_2 en vue de la production d'ammoniac où un enlèvement pratiquement complet du gaz acide, tel que le CO_2 , se révèle nécessaire. Il est également utilisé dans les cas où un gaz acide, tel que le CO_2 , est engendré avec d'autres gaz acides ou lorsque les pressions partielles du CO_2 et d'autres gaz sont faibles.

On se réfère généralement à la seconde catégorie sous le nom de procédé de lavage avec une base aqueuse ou procédé à la "potasse chaude". Dans ce type de procédé, on incorpore une faible proportion d'une amine à titre d'activateur sur la base aqueuse utilisée dans la solution de lavage. Ce type de procédé se met généralement en oeuvre lorsque l'on souhaite obtenir un enlèvement en masse d'un gaz acide, tel que le CO_2 . Ce procédé s'applique également à des situations où les pressions du CO_2 et du gaz d'alimentation sont élevées. Au cours de tels procédés, des résultats intéressants sont obtenus en utilisant des solutions aqueuses de carbonate de potassium comme activateurs d'amine.

On se réfère généralement à la troisième catégorie de procédé sous l'appellation de procédé à solvant non aqueux. Lors de la mise en oeuvre de ce procédé, l'eau est un constituant mineur de la solution de lavage et l'amine est dissoute dans la phase liquide contenant le solvant. Au cours de ce procédé, jusqu'à

50 % d'amine sont dissous dans la phase liquide. Ce type de procédé s'utilise pour des applications spécialisées où la pression partielle du CO_2 est extrêmement élevée et/ou de nombreux gaz acides sont présents, par exemple COS , CH_3SH et CS_2 .

La présente invention concerne également un procédé pour la séparation sélective d'un produit de dégradation du type urée cyclique qui peut se former à titre de sous-produit lors de la mise en oeuvre de la seconde catégorie de procédé de lavage de gaz acides décrit plus haut, à savoir, le procédé de lavage avec base aqueuse ou procédé à la "potasse chaude", conformément auquel on utilise une amine empêchée.

De nombreux procédés industriels d'élimination de gaz acides, tels que le CO_2 , font appel à des solutions de lavage à base d'alcalis aqueuses régénérables, comme une amine et du carbonate de potassium, que l'on fait continuellement circuler entre une zone d'absorption où des gaz acides sont absorbés et une zone de régénération où ils sont désorbés, habituellement par épuration à la vapeur d'eau. Le coût en capital de ce procédé de lavage de gaz acides est généralement réglé par le calibre des tours d'absorption et de régénération, le calibre des rebouilleurs pour la formation de la vapeur d'eau d'épuration et le calibre des condenseurs qui

condensent la vapeur d'eau d'épuration épuisée, de façon que le condensat puisse être recyclé dans le système afin de conserver un équilibre d'eau approprié. Le coût de fonctionnement de telles installations de lavage est généralement lié à la quantité de chaleur nécessaire pour l'enlèvement d'une quantité donnée de gaz acides, c'est-à-dire l'efficacité thermique, qui s'exprime parfois sous forme de litres de gaz acides enlevés par kilo de vapeur d'eau consommée. Des moyens pour réduire les coûts de fonctionnement de ces procédés industriels se sont focalisés sur l'emploi de systèmes d'absorption ou de combinaisons d'absorbants chimiques qui fonctionnent de manière plus efficace et plus efficace dans des procédés de lavage de gaz acides utilisant un équipement existant.

Dans les brevets des Etats-Unis d'Amérique N° 4 112 050, 4 112 051 et 4 112 052, il est décrit que des amines stériquement empêchées amélioreraient extraordinairement l'efficacité, l'efficacité et la capacité de rendement cyclique de procédés de lavage de gaz acides dans les trois catégories de procédés susmentionnés. Dans le cas du procédé de lavage de gaz acides contenant du CO_2 à la "potasse chaude" activée à l'aide d'une amine stériquement empêchée, conforme à l'invention décrite dans le brevet des Etats-Unis d'Amérique N° 4 112 050, le procédé peut fonctionner avec une capacité de rendement cyclique notablement supérieure à celle que l'on rencontre lorsque de la diéthanolamine ou de la

1,6-hexanediamine constitue l'activateur du type amine utilisé dans un procédé similaire. On émet l'hypothèse que l'accroissement de la capacité cyclique observée avec les amines stériquement empêchées est dû à l'instabilité de leurs carbamates. A cet égard, les amines stériquement empêchées sont semblables aux amines tertiaires. Les amines tertiaires ne sont pas utilisées à l'échelle industrielle pour le lavage de gaz acides contenant de l'anhydride carbonique, en raison de leur faibles vitesses d'absorption et de désorption.

Les N-alkyl alkylène diamines sont avantageusement utilisées comme activateurs du type amine stériquement empêchées dans le procédé à la "potasse chaude". Une amine stériquement empêchée préférée utilisée à titre d'activateur au cours de la mise en oeuvre du procédé à la "potasse chaude" est la N-cyclohexyl-1,3-propane diamine. Cette amine, en présence d'un amino acide est suffisamment soluble dans l'eau dans des conditions d'absorption et de désorption pour maintenir une phase unique et elle possède également une capacité d'absorption très élevée.

Bien que la N-cyclohexyl-1,3-propane diamine s'est révélée donner d'excellents résultats à titre d'activateur lors de la mise en oeuvre du procédé de traitement à la "potasse chaude", un inconvénient de cette diamine dans les procédés où elle a été utilisée, réside dans le fait qu'elle engendre un produit du type urée cyclique

lorsque le gaz traité acide est riche en CO_2 et contient également de l' H_2S . L'urée cyclique a un effet nuisible sur les vitesses d'enlèvement du CO_2 et doit être enlevée ou séparée et remplacée par de la N-cyclohexyl-1,3-propane diamine fraîche. La vitesse à laquelle il faut regarnir l'installation en amine empêchée n'exerce qu'un effet minimal sur les caractéristiques économiques du procédé; cependant, l'urée cyclique qui est formée doit être sélectivement préparée afin de pouvoir conserver de bonnes performances d'enlèvement des gaz acides.

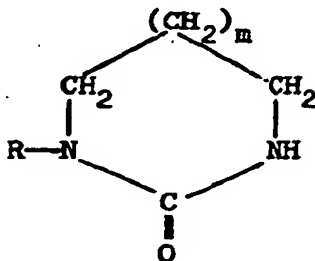
La présente invention qui est décrite dans le présent mémoire représente un perfectionnement du procédé de traitement de gaz à la "potasse chaude" activée à l'aide d'une amine, qui comprend l'utilisation d'une amine empêchée ayant une tendance à former des urées cycliques dans des conditions riches en CO_2 et en présence de H_2S . La présente invention a plus particulièrement pour objet un stade ou étage de traitement où l'urée cyclique peut être sélectivement séparée de la solution en circulation de façon à empêcher toute perte de capacité d'enlèvement de gaz acides.

La présente invention a plus particulièrement pour objet un procédé de lavage de gaz acides assurant la séparation sélective d'un produit de réaction du type urée cyclique qui se forme à titre de sous-produit au cours de l'enlèvement des gaz acides, caractérisé en ce que :

(a) on met un mélange de gaz acides en contact avec une solution aqueuse, de préférence selon un écoulement à contre-courant, dans une zone d'absorption, ladite solution aqueuse comprenant une matière alcaline constituée d'un hydroxyde de métal alcalin ou d'un sel d'alcali basique choisi dans le groupe formé par les phosphates, borates, hydroxydes, carbonates, bicarbonates de métaux alcalins et leurs mélanges, ainsi qu'un activateur pour ledit sel basique comprenant au moins une amine stériquement empêchée répondant à la formule générale suivante :



dans laquelle R représente un groupe cycloalkyle ou alkyle secondaire ou tertiaire comportant de 4 à 20 atomes de carbone et m a une valeur qui varie de 2 à 5, à des pressions et à des températures élevées au point qu'un produit de dégradation du type urée cyclique répondant à la formule générale suivante :



dans laquelle R représente un groupe cycloalkyle ou alkyle secondaire ou tertiaire comportant de 4 à 20 atomes de carbone et m a une valeur qui varie de 0 à 3,

se forme et que l'on parvienne à une charge de 7,48 à 74,8 dm³ de gaz acides par litre de solution aqueuse;

(b) on fait passer la solution aqueuse riche en gaz acides produite au cours de l'étape (a) dans une zone de régénération fonctionnant à des températures qui varient de 93 à 121°C et à des pressions manométriques qui varient de 0,07 à 1,05 kg/cm², où elle est mise en contact, de préférence en écoulement à contre-courant, avec de la vapeur d'eau de façon à la débarrasser des impuretés du type gaz acides;

(c) on refroidit une partie de la solution appauvrie quittant ladite zone de régénération jusqu'à des températures variant de 49°C à 82°C, de telle manière que le produit de dégradation du type urée cyclique acide soit sélectivement précipité de ladite solution appauvrie;

(d) on fait passer ladite solution appauvrie contenant ledit produit de dégradation du type urée cyclique précipité précité dans une zone de séparation de façon à séparer au moins une partie dudit produit de dégradation du type urée cyclique de ladite solution appauvrie.

Selon une forme de réalisation préférée du procédé suivant l'invention, ce dernier comprend les étapes supplémentaires caractérisées en ce que :

(e) on surveille l'accumulation dudit produit de dégradation dans ladite zone de séparation, de préférence, à l'aide d'un milieu filtrant, jusqu'à ce que la chute de pression à travers ledit milieu filtrant

atteigne environ $1,75 \text{ kg/cm}^2$, moment auquel ledit filtre est mis hors service et remplacé par un filtre propre;

(f) on nettoie le filtre mis hors service, par lavage avec de l'eau chaude ayant une température préférée de 93 à 116°C .

Le produit de dégradation se forme principalement dans des conditions riches et s'accumule graduellement dans la solution entraînant une chute des capacités d'enlèvement des gaz acides de la solution en circulation. Lorsqu'il se produit une accumulation, il devient nécessaire d'évacuer le produit de dégradation du type urée cyclique de manière à conserver la vitesse d'enlèvement des gaz acides élevée à la solution d'amine empêchée. Ceci s'effectue, conformément au procédé suivant la présente invention, en réalisant un courant de dérivation à partir de la solution appauvrie que l'on refroidit jusqu'à une température préférée de 54 à 71°C et que l'on fait ensuite passer sur un lit de carbone ou un milieu filtrant. On a constaté que la matière du type urée cyclique possédait des propriétés de solubilité non encore égalées à ce jour, lorsqu'elle était présente dans la solution en circulation contenant K_2CO_3 , KHCO_3 , KHS , l'amine stériquement empêchée et un amino acide. On a constaté que l'urée cyclique qui possède certaines propriétés physiques semblables à celles de l'amine empêchée, se séparaient sélectivement de manière inattendue de la solution lorsqu'elle était refroidie à

partir de 93°C jusqu'à une température d'environ 71 à 54°C. Aucun des autres constituants ne sort de la solution dans ces conditions. Si la solution est refroidie en-dessous de 57°C, la quantité d'urée cyclique qui sort de la solution est considérable et tend à provoquer le colmatage de l'équipement. Aussi longtemps que la température est maintenue au-dessus de 57°C, la tendance au colmatage de l'équipement est minimisée et la filtration peut se dérouler efficacement. Si l'on refroidit la solution même davantage jusqu'à 38°C et moins encore, alors le KHCO_3 précipite également de la solution et le procédé ne reste plus sélectif. L'invention décrite dans le présent mémoire définit la région des températures critiques dans laquelle l'urée cyclique peut être sélectivement précipitée et séparée sans enlèvement de l'un quelconque des autres nombreux composants présents dans la solution.

Les composants acides qui doivent être enlevés du mélange gazeux par mise en oeuvre du procédé de lavage sont, de préférence, choisis dans le groupe constitué de CO_2 seul ou d'une combinaison de ce dernier avec H_2S , SO_2 , CS_2 , HCN , COS et les dérivés oxygénés et sulfurés des hydrocarbures en $\text{C}_1\text{-C}_4$.

La matière alcaline comprenant les hydroxydes de métaux ou les sels d'alcali basiques sera choisie dans le groupe formé par les phosphates, borates, hydroxydes, carbonates, bicarbonates de métaux alcalins et leurs mélanges.

La mise en contact du mélange absorbant et des gaz acides peut avoir lieu dans n'importe quelle tour de mise en contact convenable. Au cours de procédés de ce genre, le mélange gazeux dont les gaz acides doivent être enlevés, peut être mis en contact intime avec la solution absorbante en utilisant un dispositif de réglage approprié, comme une tour garnie, par exemple, de bagues en matière céramique ou de plateaux criblants ou de plateaux à cloches de barbotage, ou un réacteur à barbotage. Dans un mode préféré de mise en oeuvre du procédé suivant l'invention, l'étape d'absorption est réalisée en introduisant le mélange gazeux à la base de la tour, tandis que l'on amène la solution absorbante appauvrie par le sommet de cette dernière. Le mélange gazeux, en grande partie débarrassé des gaz acides, émerge par le sommet de la tour. De préférence, la température de la solution absorbante au cours de l'étape d'absorption varie entre environ 66 et environ 132°C. et, plus avantageusement encore, entre environ 66 et environ 121°C. Les pressions peuvent varier entre de très larges limites, des pressions acceptables variant, au manomètre, entre 0,35 et 140 kg/cm². Dans le désorbeur, les pressions manométriques varient entre environ 0,07 et 1,05 kg/cm².

Le procédé conforme à la présente invention sera mieux compris en se référant à la description détaillée

qui suit, faite en référence à la figure annexée dans laquelle:

la figure représente un schéma de fonctionnement d'une forme de réalisation du procédé suivant l'invention.

En se référant à présent plus particulièrement à la figure , on voit que le gaz acide est introduit par la conduite 1 dans la colonne d'absorption 2 où il entre en contact avec la solution de la phase aqueuse introduite par la conduite 22. La solution de lavage se trouve à une température d'environ 93°C et possède une concentration en amine d'environ 1 à 10 % en poids, de préférence 3 à 8 % en poids. Au fur et à mesure de la descente du liquide absorbant dans la colonne d'absorption, les impuretés gazeuses acides sont absorbées.

La solution absorbante, enrichie en impuretés gazeuses acides, sort de la colonne d'absorption 2 pour pénétrer dans la conduite 3 qui entraîne la solution enrichie à travers l'échangeur de chaleur 4 dans la conduite 5. La conduite 5 fait passer la solution

enrichie dans le régénérateur 6 où les gaz sont séparés de la solution et sortent en tête par la conduite 11. La solution appauvrie formée dans la colonne de régénération passe au fond de la colonne 6 et sort par la conduite 7 qui entraîne la solution appauvrie vers le rebouilleur 8 où elle est portée à l'ébullition par la vapeur d'eau entrant par la conduite 9, les vapeurs acides pénétrant par la conduite 10 dans le régénérateur 6. La solution appauvrie (sensiblement débarrassée d'acides) sort du rebouilleur 8 par la conduite 12. La conduite 12 amène la solution appauvrie à passer par la pompe 13 et de cette pompe dans la conduite 14. La conduite 14 fait passer la solution appauvrie dans l'échangeur de chaleur 4 et une certaine partie de la solution est davantage refroidie dans l'échangeur de chaleur 19 par de l'eau entrant par la conduite 18 pour arriver à des températures fluctuant de 82 à 49°C, de préférence de 71 à 54°C, plus avantageusement encore, de 66 à 57°C, afin de sélectivement précipiter le produit de dégradation du type urée cyclique, tout en conservant tous les autres composants en solution. La solution contenant les solides du type urée cyclique est amenée à passer dans la conduite 15 d'où elle parvient à l'élément filtrant 16. Le produit de dégradation du type urée cyclique s'accumule sur le filtre et est par conséquent sélectivement séparé de la solution

appauvrie. Lorsque l'accumulation finale de la matière insoluble sur le filtre provoque une chute de pression de, par exemple, environ $1,75 \text{ kg/cm}^2$, on met en service un filtre secondaire 17 afin de permettre la poursuite de la mise en oeuvre du procédé au cours du nettoyage du filtre mis hors service.

La solution appauvrie sort du filtre 16 par la conduite 23 et vient se joindre à une certaine partie de l'autre solution appauvrie dans la conduite 21 qui n'a pas été refroidie par l'échangeur 19. Ces deux courants se combinent et pénètrent dans l'absorbeur à sa partie supérieure. Le gaz purifié sort de l'absorbeur 2 par la conduite 24. On fait passer de l'eau chaude qui se trouve à une température d'environ 110°C par la conduite 20 dans l'élément filtrant 16 afin d'enlever l'urée cyclique par lavage du filtre et de permettre sa réutilisation effective.

Les exemples qui suivent illustrent la présente invention sans pour autant limiter cette dernière.

EXEMPLE 1

On a préparé une solution de traitement qui possédait la composition suivante : 30 % en poids de K_2CO_3 (avec 10 % sous forme de KHCO_3), 6,0 % en poids de cyclohexyl-1,3-propanediamine, 6,1 % en poids d'acide pipécolonique, 56,2 % en poids d'eau et 1,7 % en poids d'urée cyclique, c'est-à-dire la 1-cyclohexyl-hexahydro-2-pyrimidinone telle que décrite dans la demande de brevet des Etats-Unis d'Amérique N° 930 922 déposée

le 2 août 1978 dont la description est incorporée au présent mémoire à titre de référence. La solution à 93°C environ était présente sous forme d'une phase liquide unique. On a ensuite refroidi cette solution jusqu'à 150°C et on l'a fait passer sur un élément filtrant qui était un élément enveloppé de coton possédant un calibre nominal de 100 μ . La teneur en urée cyclique diminuait ainsi de 1,7 % en poids jusqu'à moins de 1,0 % en poids. La vitesse de filtration était de 0,5 gpm et le calibre du filtre était un cylindre d'un diamètre de 7,62 cm, d'une hauteur de 10,16 cm et d'une ouverture interne d'un diamètre d'environ 2,54 cm. On a analysé le gâteau de filtration et on a constaté qu'il était constitué d'urée cyclique pure et qu'aucun autre composant de la solution n'était présent. Cet exemple montre que l'urée cyclique peut être sélectivement séparée par mise en oeuvre de ce procédé. Il n'est pas nécessaire de totalement enlever toute l'urée cyclique, mais d'être juste capable d'en maintenir la concentration à un niveau nominalelement faible, même si elle est constamment produite au cours du procédé.

EXEMPLE 2

On a refroidi la solution de traitement des gaz décrite à l'exemple 1, jusqu'à 54°C, température à laquelle considérablement plus d'urée cyclique sortit de la solution. Le fonctionnement du procédé dans ces conditions a cependant entraîné un état quelque peu

non fonctionnel en raison de la tendance au colmatage du précipité résultant. Dans le système d'écoulement dans lequel le courant est continuellement filtré, une telle tendance au colmatage des conduites comme observée ci-dessus, rend le système quelque peu inopérable. Par conséquent, ce test a indiqué que pour cette solution, le refroidissement jusqu'à une température inférieure à 54°C entraînait un problème de fonctionnement indésirable. Les solides qui furent filtrés au cours de cet essai étaient de nouveau de l'urée cyclique pure sans qu'aucun autre des composants de la solution y fut présent.

EXEMPLE 3

On a préparé une autre solution de traitement de gaz qui était similaire à celle décrite à l'exemple 1, mais qui contenait environ 50 % de K_2CO_3 , présents sous forme de $KHCO_3$. Dans cette solution, le refroidissement de 93°C environ jusqu'à environ 66°C provoqua de nouveau la précipitation sélective de l'urée cyclique de la solution. Lorsque la solution fut davantage refroidie jusqu'à quelque peu en-dessous de 38°C, on constata que le procédé n'était plus sélectif, en ce sens qu'outre la précipitation de l'urée cyclique, le $KHCO_3$ précipita également. Cet essai indique au surplus la gamme des températures critiques dans laquelle l'urée cyclique précipite sélectivement. Si la température descend en-dessous d'environ 38°C, le procédé n'est plus sélectif. On a constaté que le gâteau de filtration

contenait des quantités substantielles de KHCO_3 au cours de cet essai.

EXEMPLE 4

On a préparé une autre solution de traitement de gaz qui possédait une composition similaire à celle indiquée à l'exemple 1, sauf que la teneur en urée cyclique était de 1,4 % en poids. On a refroidi cette solution jusqu'à $64,44^\circ\text{C}$ et on l'a filtrée en utilisant l'agencement filtrant tel que décrit à l'exemple 1, mais avec un élément de $5\ \mu$ plutôt qu'avec l'élément de $100\ \mu$. On a réalisé l'essai à 0,5 gpm et on a analysé le gâteau de filtration recueilli pour constater qu'il était constitué d'urée cyclique pure. Au cours de ce test, on a effectué l'essai jusqu'à ce que la chute de pression à travers l'élément atteignit environ $1,75\ \text{kg/cm}^2$.

EXEMPLE 5

Après l'achèvement de l'essai décrit à l'exemple 4, le filtre manifesta une chute de pression de $1,75\ \text{kg/cm}^2$ en raison de la présence du gâteau d'urée cyclique sur l'élément filtrant. On a lavé ce gâteau avec de l'eau à 77°C et on a procédé à un second cycle, la durée de ce nouvel essai n'atteignant qu'environ 25 % de la durée de l'essai initial. Ceci a indiqué que le lavage avec de l'eau à 75°C ne constituait pas un procédé de nettoyage efficace. On a lavé le filtre avec de l'eau à

P

110°C et on a ensuite procédé à un nouveau cycle. Dans ce cas, la durée du cycle était équivalente à celle du cycle initial sur le filtre frais. On a procédé à trois cycles complets supplémentaires au cours desquels on a lavé le gâteau de filtration avec de l'eau à 110°C environ après qu'une chute de pression de $1,75 \text{ kg/cm}^2$ se fût manifestée au cours de l'accumulation du gâteau d'urée cyclique. Dans chaque cas, la quantité d'urée cyclique enlevée était la même que celle enlevée avec un nouveau filtre. Ces tests sont les témoins d'une technique de lavage efficace au cours de laquelle le caractère critique de la température de l'eau est clairement démontré.

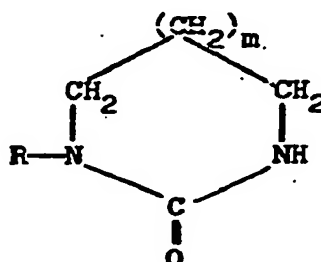
REVENDICATIONS

1. Procédé de lavage de gaz acides pour l'enlèvement sélectif d'un produit de réaction du type urée cyclique qui se forme à titre de sous-produit de l'élimination des gaz acides, caractérisé en ce que :

a. on met en contact un mélange de gaz acides avec une solution aqueuse dans une zone d'absorption, ladite solution aqueuse comprenant un hydroxyde de métal ou un sel d'alcali basique, choisi dans le groupe formé par les phosphates, borates, hydroxydes, carbonates, bicarbonates de métaux alcalins et leurs mélanges et un activateur pour ledit sel basique comprenant au moins une amine stériquement empêchée répondant à la formule générique suivante :



dans laquelle R représente un groupe cycloalkyle ou alkyle secondaire ou tertiaire possédant de 4 à 20 atomes de carbone et m a une valeur qui varie de 2 à 5, à des températures et des pressions élevées, telles qu'il se forme un produit de réaction du type cyclique répondant à la formule suivante :



dans laquelle R représente un groupe cycloalkyle ou alkyle secondaire ou tertiaire possédant 4 à 20 atomes de carbone et m a une valeur qui varie de 0 à 3,

b. on fait passer la solution aqueuse riche en gaz acides dans une zone de régénération où elle est mise en contact avec de la vapeur d'eau de façon à la débarrasser des impuretés gazeuses acides qu'elle contient,

c. on refroidi une partie de la solution appauvrie quittant la zone de régénération précitée jusqu'à une température qui fluctue d'environ 82°C à environ 49°C de manière à sélectivement précipiter l'urée cyclique de ladite solution appauvrie,

d. on fait passer ladite solution appauvrie contenant ladite urée cyclique précipitée, dans une zone de séparation pour séparer au moins une fraction de l'urée cyclique de ladite solution appauvrie.

2. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que l'amine stériquement empêchée précitée est une N-alkyl-alkylène diamine.

3. Procédé suivant la revendication 2, caractérisé en ce que ladite solution appauvrie quittant la zone de régénération précitée est refroidie jusqu'à une température qui fluctue de 54°C environ à 71°C environ.

4. Procédé suivant la revendication 3, caractérisé en ce que ladite amine théoriquement empêchée est la cyclohexyl-1,3-propanediamine.

5. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que ladite solution appauvrie qui sort de ladite zone de régénération est refroidie jusqu'à une température qui varie d'environ 57°C à environ 66°C.

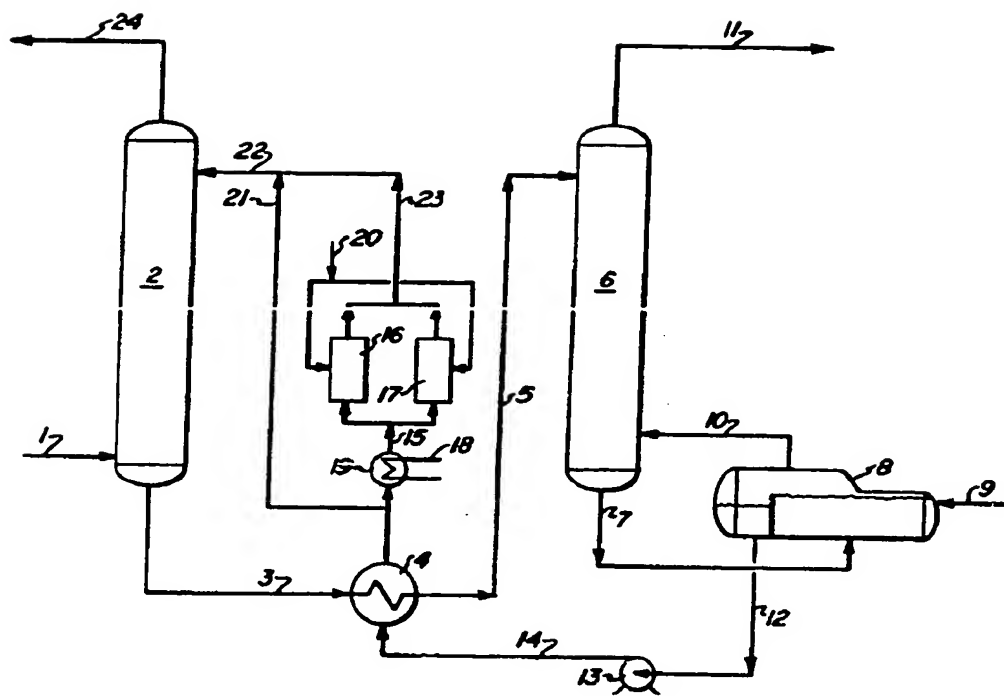
6. Procédé suivant la revendication 5, caractérisé en ce que ladite urée cyclique est séparée en faisant passer la solution appauvrie précitée à travers des milieux de séparation comprenant des filtres poreux ou des lits de carbone activé.

7. Procédé suivant la revendication 5, caractérisé en ce que l'accumulation de ladite urée cyclique sur ledit filtre est surveillée jusqu'à ce que la chute de

pression à travers le filtre précité atteint environ
1,75 kg/cm², moment auquel le filtre en question est
mis hors service et est remplacé par un second filtre.

BRUXELLES, le - 2 JUIN 1980
P. Pos Exxon Research
and Engineering
Company
Bureau VANDER KEEGEN
Speel

FIG. 1



BRUXELLES, le 2 III 1980

P. P. Saxon Research
and Engineering
Company

P. P. Saxon BUREAU CHIMIE BRUXELLES

S. P. Saxon

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.